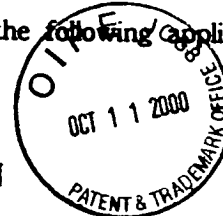


日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
る事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
in this Office.



出願年月日  
Date of Application:

1999年11月19日

願番号  
Application Number:

平成11年特許願第329590号

願人  
Applicant(s):

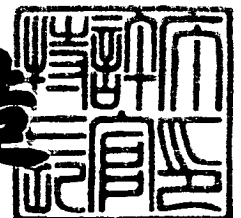
日立金属株式会社

RECEIVED  
OCT 13 2000  
TO THE PATENT OFFICE

2000年 7月21日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3056885

【書類名】 特許願

【整理番号】 JK99078

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G03G 15/09

【発明者】

    【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地日立金属株式会社磁性材料研究所内

    【氏名】 所 久人

【発明者】

    【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地日立金属株式会社熊谷磁材工場内

    【氏名】 内田 公穂

【特許出願人】

    【識別番号】 000005083

    【氏名又は名称】 日立金属株式会社

    【代表者】 枝 徹也

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 010375

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 希土類焼結磁石およびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ラジアル方向の残留磁束密度 ( $Br_{//}$ ) とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度 ( $Br_{\perp}$ ) とにより

$[(Br_{//})/(Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する室温における配向度が 85.5% 以上であることを特徴とする希土類焼結磁石。

【請求項 2】 ラジアル異方性を有し、室温におけるラジアル方向の角形比 ( $H_k/iH_c$ ) が 87.5% 以上である請求項 1 に記載の希土類焼結磁石。

【請求項 3】 焼結した接合部を有する請求項 1 または 2 に記載の希土類焼結磁石。

【請求項 4】 主要成分の R と T (R は Y を含む希土類元素の少なくとも 1 種、T は Fe または Fe と Co) と B との合計を 100 重量% としたとき、重量% で R が 28~33%、B が 0.5~2%、残部 T からなる組成を有し、かつラジアル異方性を有する希土類焼結磁石であって、

前記希土類焼結磁石の全重量を 100 重量% としたとき、重量% で酸素を 0.6% 以下、炭素を 0.15% 以下、窒素を 0.15% 以下含有し、かつラジアル方向の残留磁束密度 ( $Br_{//}$ ) とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度 ( $Br_{\perp}$ ) とにより  $[(Br_{//})/(Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する室温における配向度が 85.5% 以上であることを特徴とする希土類焼結磁石。

【請求項 5】 室温におけるラジアル方向の角形比 ( $H_k/iH_c$ ) が 87.5% 以上である請求項 4 に記載の希土類焼結磁石。

【請求項 6】 焼結した接合部を有する請求項 4 または 5 に記載の希土類焼結磁石。

【請求項 7】 Ca を 0.3 重量% 以下 (0 を含まず) 含有する請求項 4 乃至 6 のいずれかに記載の希土類焼結磁石。

【請求項 8】 密度が  $7.57\text{g/cm}^3$  以上である請求項 4 乃至 7 のいずれかに記載の希土類焼結磁石。

【請求項 9】 希土類焼結磁石用の原料合金を酸素濃度が 4000ppm 以下 (体

積比) の不活性ガス雰囲気中で粉碎後、鉱物油、合成油、植物油の少なくとも 1 種の油と非イオン性または陰イオン性の界面活性剤とからなる液中に回収してスラリー状の成形原料を形成し、その成形原料を用いてラジアル配向磁場中で成形後、脱油、焼結、熱処理を行うことを特徴とする希土類焼結磁石の製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、従来よりもラジアル方向の磁気特性を顕著に向上したラジアル異方性を有する希土類焼結磁石およびその製造方法に関する。

#### 【0002】

#### 【従来の技術】

希土類焼結磁石は原料合金を粉碎したものをを用いて成形、焼結、熱処理および機械加工を行い、さらに必要に応じて表面処理を施したものが実用に供されている。特に  $R_2T_{14}B$  型金属間化合物 ( $R$  は  $Y$  を含む希土類元素の少なくとも 1 種、 $T$  は  $Fe$  または  $Fe$  と  $Co$ ) を主相とする  $R-T-B$  系希土類焼結磁石は高性能磁石として多用されている。しかし、前記原料合金の粉碎粉末は大気中で急激に酸化し、磁気特性の劣化を招来する。顕著な場合は急激な酸化により発火してしまうため安全性の面からも問題があった。急激な酸化を防止する方法として、本発明者らは、非酸化性の鉱物油または合成油中に希土類焼結磁石用の原料微粉を回収し、酸化を抑えつつ磁場中成形後、脱油、焼結および熱処理する希土類焼結磁石の製造方法 (特許第 2731337 号公報、特許第 2859517 号公報) を提案した。この提案により、前記油を用いない従来の乾式成形法による場合に比べて酸素含有量が顕著に低減されて  $R_2T_{14}B$  型金属間化合物の理論密度にほぼ相当する緻密でかつ高密度の焼結体を得られ、 $(BH)_{max}$  を大きく向上することができた。さらに、所定量のオレイン酸を添加した非酸化性の鉱物油、合成油または植物油中に希土類焼結磁石用の原料合金の微粉を回収して成形用のスラリー原料とすれば、連続成形性が顕著に改善されて高性能の希土類焼結磁石を効率よく量産できることを提案した (特開平 8-130142 号公報参照)。

しかし、特許第 2859517 号公報に記載の製造条件に基づいてラジアル異方性を有

するリング形状の希土類焼結磁石（以後、ラジアルリングという）を工業生産する場合、その成形工程においてラジアル配向磁場を成形金型のキャビティの内径側から外径側に通すことが必須であり、キャビティの内径寸法が小さいほどラジアル配向磁場強度が弱くなるという固有の問題を有する。このため、製造されるラジアルリングの内径寸法が小さくなるほどラジアル配向磁場強度が小さくなり、ラジアル方向の磁気特性が劣化する。この劣化傾向は、通常の工業生産においてラジアル配向磁場強度が5kOe以下になる内径寸法が50mm以下のラジアルリングで顕著である。

図3にラジアル配向磁場強度（ $H_{ap}$ ）とラジアルリングのラジアル方向の $Br$ との相関の一例を示す。図3において（▲）が特許第2859517号公報に記載のスラリー状の成形原料を用いた場合であるが、期待されたほど高い $Br$ が得られなかった。 $Br$ が顕著に向上しない原因について本発明者らが鋭意検討した結果、ラジアル方向の配向度の悪さによることがわかった。また、本発明者らの別の検討から、5kOe以下という実用性に富んだラジアル配向磁場強度でアークセグメント形状の成形体を磁場中成形後、焼結、熱処理してなるラジアル異方性を有するアークセグメント形状の希土類焼結磁石においてもラジアル方向の配向度が悪く、ラジアル方向で高い磁気特性を実現できないことがわかった。

### 【0003】

#### 【発明が解決しようとする課題】

このように実用性に富んだラジアル配向磁場強度下で磁場中成形後、焼結、熱処理したもののラジアル方向の磁気特性（配向度、角形比（ $H_k/iH_c$ ）、 $(BH)_{max}$ 等）を顕著に向上できれば永久磁石応用製品分野の発展に大きく貢献できることが期待される。ここで、 $H_k$ は $4\pi I$ （磁化の強さ）- $H$ （磁界の強さ）曲線の第2象限において、 $0.9Br$ に相当する位置の $H$ の値であり、 $H_k$ を保磁力 $iH_c$ で除した値（ $H_k/iH_c$ ）が $4\pi I$ - $H$ 減磁曲線の矩形性の尺度を示す角形比である。また、配向度は、ラジアル方向の残留磁束密度（ $Br_{//}$ ）とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度（ $Br_{\perp}$ ）とから、配向度=  $[(Br_{//})/(Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する。

したがって、本発明の課題は、従来に比べてラジアル方向の磁気特性を顕著に

向上した希土類焼結磁石およびその製造方法を提供することである。

【0004】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決した本発明は、ラジアル方向の残留磁束密度 ( $Br_{//}$ ) とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度 ( $Br_{\perp}$ ) とにより

$[(Br_{//}) / (Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する室温における配向度が85.5%以上の希土類焼結磁石である。

前記希土類焼結磁石として、室温におけるラジアル方向の角形比( $H_k/iH_c$ )が87.5%以上のものを提供することができる。

また前記希土類焼結磁石として、焼結した接合部を有するものが実用性に富んでいる。

【0005】

また本発明は、主要成分のRとTとBとの合計を100重量%としたとき、重量%でRが28~33%、Bが0.5~2%、残部Tからなる組成を有しかつラジアル異方性を有する希土類焼結磁石であって、前記希土類焼結磁石の全重量を100重量%としたとき、重量%で酸素を0.6%以下、炭素を0.15%以下、窒素を0.15%以下含有し、かつラジアル方向の残留磁束密度 ( $Br_{//}$ ) とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度 ( $Br_{\perp}$ ) とにより  $[(Br_{//}) / (Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する室温における配向度が85.5%以上の希土類焼結磁石である。

前記希土類焼結磁石として、室温におけるラジアル方向の角形比( $H_k/iH_c$ )が87.5%以上のものを提供することができる。

また前記希土類焼結磁石として、焼結した接合部を有するものが実用性に富んでいる。

還元剤としてCaを用いた還元／拡散法により作製したR-T-B系原料合金(R, T, B各元素の含有量範囲は前記本発明の焼結磁石と同様のもの)を用いる場合は、最終的に得られる希土類焼結磁石のCa含有量を0.3重量%以下(0を含まず)にすることがラジアル方向の良好な磁気特性を実現するために必要である。

また酸素含有量を0.3重量%以下に低減すれば焼結性が向上するので、R-T

—B系焼結磁石の場合緻密化した $7.57\text{g/cm}^3$ 以上の高密度型のものを得られる。さらに酸素含有量を0.2重量%未満に低減すれば、 $7.58\text{g/cm}^3$ 以上、さらに好ましくは $7.60\sim 7.70\text{g/cm}^3$ のものを得られる。

【0006】

本発明の希土類焼結磁石が $R_2T_{14}B$ 型金属間化合物を主相とするR—T—B系焼結合金の場合、許容される主要成分組成は、最も広い場合で、重量%で、R28～33%、B0.5～2%、 $M_1$ 0～0.6% ( $M_1$ はNb, Mo, W, V, Ta, Cr, Ti, Zr, Hfの少なくとも1種)、残部Tからなることが好ましい(ただし、 $R+B+T+M_1=100$ 重量%とした場合)。

R量は28～33%が好ましい。R量が28%未満では実用に耐えるiHcが得られず、33%超ではBrが大きく低下する。

B量は0.5～2%が好ましく、0.8～1.5%がより好ましい。B量が0.5未満では実用に耐えるiHcが得られず、2%超ではBrが大きく低下する。

Nb, Mo, W, V, Ta, Cr, Ti, Zr, Hfの少なくとも1種からなる高融点金属元素 $M_1$ を0.01～0.6%含有することがより好ましい。 $M_1$ を0.01～0.6%含有することにより、焼結過程での主相結晶粒の過度の粒成長が抑えられて、iHcを高めることができる。しかし、 $M_1$ を0.6%超含有すると逆に主相結晶粒の正常な粒成長が阻害され、Brの低下を招く。また、 $M_1$ 含有量が0.01%未満では添加効果が認められない。

また本発明の希土類焼結磁石は、重量%で、主要成分がR28～33%、B 0.5～2%、 $M_1$ 0.01～0.6% ( $M_1$ はNb, Mo, W, V, Ta, Cr, Ti, Zr, Hfの少なくとも1種)、 $M_2$ 0.01～0.3% ( $M_2$ はAl, Ga, Cuの少なくとも1種)、残部Tからなる場合が実用性に富んでいる(ただし、 $R+B+T+M_1+M_2=100$ 重量%とした場合)。

$M_2$ 元素(Al, Ga, Cuの少なくとも1種)の含有量は0.01～0.3%とされる。

Alの含有によってiHcが向上し、焼結体の耐食性が改善される。しかし、Al含有量が0.3%超ではBrが大きく低下し、0.01%未満ではiHcと耐食性を改善する効果が得られない。

G a の含有により iHc が顕著に向上するが、G a 含有量が 0.3% 超では Br が大きく低下し、0.01% 未満では iHc を向上する効果が得られない。

C u の微量添加は焼結体の耐食性の改善と iHc の向上に有効であるが、C u 含有量が 0.3% 超では Br が大きく低下し、0.01% 未満では耐食性の改善および iHc の向上が認められない。

C o の含有により焼結体の耐食性が改善され、かつキュリー点が上昇して永久磁石としての耐熱性が向上する。しかし、C o 含有量が 5% 超では磁気特性に有害な F e - C o 相が形成され、Br と iHc が共に低下する。よって、C o 含有量は 5% 以下とされる。一方、C o 含有量が 0.5% 未満では耐食性の改善や耐熱性の向上が認められない。よって、C o 含有量は 0.5~5% が好ましい。

不可避に含有される酸素量は 0.6% 以下、より好ましくは 0.3% 以下、特に好ましくは 0.2% 未満が許容される。炭素量は 0.15% 以下、より好ましくは 0.10% 以下が許容される。

特に、ラジアル方向の高い磁気特性と良好な耐食性とを確保するために、R 量が 28~31% のときには酸素含有量は 0.3% 以下がよく、R 量が 31% 超 33% 以下のときには酸素含有量は 0.3% 超 0.6% 以下にするのがよい。

本発明の希土類焼結磁石が  $R_2T_{14}B$  型金属間化合物を主相とする R-T-B 系焼結合金の場合は N i めっき等の表面処理が必要になるが、ラジアル方向の高い磁気特性と良好な耐食性とを有するために、窒素含有量は 0.15% 以下が好ましく、より好ましくは 0.02~0.15% としたものが実用性に富んでいる。

#### 【0007】

本発明の希土類焼結磁石はラジアル異方性を有するリング状またはアークセグメント形状のものをいう。

また本発明の希土類焼結磁石の寸法は限定されるものではないが、リング形状品では内径寸法：5~50mm でかつ長さ寸法：3~50mm のものが永久磁石応用製品の小型化、薄肉化および高性能化のニーズに適合しており好ましい。アークセグメント形状品では内径寸法：5~50mm、長さ寸法：3~60mm および中心角：20~180° のものが実用性に富んでいる。

#### 【0008】



また本発明は、希土類焼結磁石用の原料合金を酸素濃度が4000ppm以下（体積比）の不活性ガス雰囲気中で粉碎後、鉱物油、合成油、植物油の少なくとも1種の油と非イオン性または陰イオン性の界面活性剤とからなる液中に回収してスラリー状の成形原料を形成し、その成形原料を用いてラジアル配向磁場中で成形後、脱油、焼結、熱処理を行う希土類焼結磁石の製造方法である。

前記スラリーは、（原料合金の微粉末）：（油）：（界面活性剤）＝50～80重量部：49.99～19.7重量部：0.01～0.3重量部からなるものが好ましい。この配合比率を外れると、従来に比べてラジアル方向の磁気特性を向上することが困難である。

#### 【0009】

本発明の希土類焼結磁石は  $\text{SmCo}_5$  または  $\text{Sm}_2\text{TM}_{17}$ （TMはCoとFeとCuとM' とからなり、M' はZr, Hf, Ti, Vの少なくとも1種である）を主相とするものでもよい。

#### 【0010】

本発明の希土類焼結磁石用原料合金の微粉碎は不活性ガスを粉碎媒体とするジェットミル等による乾式粉碎装置または酸化を阻止できる条件に設定された湿式ボールミル等の湿式粉碎装置を用いて行うことができる、

例えば、酸素濃度を4000ppm以下（体積比）とした不活性ガス雰囲気中でジェットミル微粉碎後、大気に触れないようにして前記不活性ガス雰囲気中から直接微粉を鉱物油、合成油または植物油と非イオン性または陰イオン性の界面活性剤とからなる液中に回収し混合物にすることがよい。この方法により微粉を大気から遮断して酸化および水分の吸着を阻止することができる。なお、鉱物油、合成油、植物油のうちの2種以上からなる混合油を用いてもよい。

前記スラリーを用いて所定の成形装置によりラジアル配向磁場中で成形する。成形体の酸化を抑えるために、成形直後から脱油までの間前記油中で保存することが望ましい。

成形体を常温から焼結温度まで急激に昇温すると成形体の内部温度が急激に上昇し、成形体に残留する油と成形体の希土類元素とが反応して希土類炭化物を生成し磁気特性が劣化する。この対策として、温度100～500℃、 $1 \times 10^{-1} \sim 9 \times 10$

— 6 Torrの真空中で0.5～10時間加熱する脱油を施すことが望ましい。前記脱油条件を外れると脱油が不十分になるか、あるいは脱油に長時間を要して工業生産効率が低下するので好ましくない。脱油の加熱温度は100～500℃であれば一点である必要はなく二点以上であってもよい。また前記真空中で室温から500℃までの昇温速度を10℃/分以下、より好ましくは5℃/分以下とする脱油処理を施すことによっても脱油が効率よく行われる。

【0011】

鉱物油、合成油または植物油として、脱油および成形性の点から、分留点が350℃以下のものがよい。さらには室温における動粘度が10cSt以下のものがよく、さらに好ましくは5cSt以下のものがよい。

【0012】

本発明の希土類焼結磁石のラジアル方向の配向度等の向上は下記の界面活性剤を用いることにより実現される。界面活性剤としては非イオン性または陰イオン性のものが有用である。

非イオン性の界面活性剤として、ポリエチレングリコール型界面活性剤または多価アルコール型界面活性剤が挙げられる。

ポリエチレングリコール型界面活性剤として、高級アルコールエチレンオキサイド付加物、アルキルフェノールエチレンオキサイド付加物、脂肪酸エチレンオキサイド付加物、多価アルコール脂肪酸エステルエチレンオキサイド付加物、高級アルキルアミンエチレンオキサイド付加物、脂肪酸アミドエチレンオキサイド付加物、油脂のエチレンオキサイド付加物、ポリプロピレングリコールエチレンオキサイド付加物の1種または2種以上が挙げられる。

また、多価アルコール型界面活性剤として、グリセロールの脂肪酸エステル、ペンタエリスリトールの脂肪酸エステル、ソルビトールおよびソルビタンの脂肪酸エステル、ショ糖の脂肪酸エステル、多価アルコールのアルキルエーテル、アルカノールアミン類の脂肪酸アミドの1種または2種以上が挙げられる。

これらのうち、高級アルキルアミンエチレンオキサイド付加物、グリセロールの脂肪酸エステル、ソルビトールおよびソルビタンの脂肪酸エステル、多価アルコールのアルキルエーテルのいずれかがより好ましい。

## 【0013】

陰イオン性の界面活性剤として、例えば特殊高分子界面活性剤または特殊ポリカルボン酸型高分子界面活性剤が挙げられる。

## 【0014】

## 【発明の実施の形態】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明はそれら実施例により限定されるものではない。

## (実施例 1)

重量百分率で主要成分組成が N d 21.4%、P r 6.0%、D y 3.1%、B 1.05%、G a 0.08%、C o 2.0%、残部 F e からなる R-T-B 系原料合金粗粉 (320メッシュアンダー) を酸素濃度が 10ppm 以下 (体積比) の窒素ガス雰囲気中でジェットミル粉碎し、平均粒径  $4.0\mu\text{m}$  (Sympatec 社製レーザー回折型粒度分布測定装置による測定値) の微粉を得た。続いてこの窒素ガス雰囲気中において大気に触れることなく、得られた微粉を、非イオン性界面活性剤であるオレイン酸モノグリセライド (花王 (株) 製、商品名: エマゾール M0-50) と鉱物油 (出光興産 (株) 製、商品名: 出光スーパーソル PA-30) とからなる液中に回収し、10 分間攪拌してスラリー状の原料を作製した。このスラリーの配合割合は、回収微粉 70 重量部: 鉱物油 29.9 重量部: オレイン酸モノグリセライド 0.1 重量部とした。次に、前記スラリーを図 4 に示す成形機のキャビティ 9 (ダイス 1 および 2 の内径: 60mm、コア 3 の外径: 45mm、ダイス強磁性部 1 の長さ: 34mm、充填深さ: 34mm) に充填後、成形圧:  $0.8\text{ton}/\text{cm}^2$ 、ラジアル方向の配向磁場強度: 約  $3\text{kOe}$  で圧縮成形してラジアル異方性を付与した成形体を得た。この成形体を約  $5 \times 10^{-1}\text{Torr}$ 、 $200^\circ\text{C}$  で 1 時間加熱して脱油後、続いて約  $3 \times 10^{-5}\text{Torr}$ 、 $1060^\circ\text{C}$  で 2 時間焼結後室温まで冷却して焼結体を得た。次に、Ar 雰囲気中で  $900^\circ\text{C}$  で 1 時間加熱後  $550^\circ\text{C}$  まで冷却し、続いて  $550^\circ\text{C}$  で 2 時間加熱後さらに室温まで冷却する熱処理を行った。続いて所定寸法に機械加工後、電着により平均膜厚  $20\mu\text{m}$  のエポキシ樹脂をコーティングして外径 48mm、内径 39mm、高さ 11mm のラジアル異方性を有する焼結リング磁石 (ラジアルリング) を得た。

次に、図 5 (a) に示すように、このラジアルリング 10 の任意の位置から接線

方向5mm×長さ方向6.5mm×ラジアル方向2.8mmの直方体を切り出した。直方体の切り出し要領について図5（b）により説明する。ラジアルリング10の任意の中心点Oから半径方向に直線OPQを引く。点Pは内周面との接点であり、点Qは外周面との接点である。次に、接点Pにおける接線RPSを引き、接線RPSの長さが接点Pを中心にして5mmになるようにする。次に、接線RPSに垂直に直線RT（長さ2.8mm）および直線SU（長さ2.8mm）を引く。次に、接線RPSに平行に直線TQU（長さ5mm）を引く。長方形RSUTにおけるRPS方向およびTQU方向がラジアルリング10の接線方向であり、RT方向およびSU方向をラジアルリング10のラジアル方向と定義する。また、長方形RSUTの厚み方向がラジアルリング10の長さ方向であり6.5mmの長さに切り出される。なお、測定対象のラジアルリングから前記寸法の直方体が切り出せない場合は、寸法が異なる以外は前記直方体の切り出し要領で複数の直方体を切り出し、切り出した複数の直方体の方向を一致させて貼り合わせて前記直方体寸法にし、接線方向、ラジアル方向および長さ方向の磁気特性を測定する。

次に、前記直方体の密度、室温（20℃）におけるラジアル方向の残留磁束密度（ $Br//$ ）、保磁力 $iH_c$ 、最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ および角形比 $(H_k/iH_c)$ を測定した。結果を表1に示す。

次に、前記直方体の室温（20℃）における長さ方向の残留磁束密度（ $Br\perp$ ）を測定後、 $[(Br//)/(Br//+Br\perp)\times 100(\%)]$ により定義する室温（20℃）における配向度を求めた。結果を表1に示す。

#### （比較例1）

オレイン酸モノグリセライドを添加しない原料スラリーとした以外は実施例1と同様にして比較例のラジアルリングを作製後、密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表1に示す。

#### （実施例2、3）

オレイン酸モノグリセライドに替えて表1に示す非イオン性界面活性剤を用いた以外は実施例1と同様にしてラジアルリングを作製後、密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表1に示す。

#### （実施例4、5）

オレイン酸モノグリセライドに替えて表1に示す陰イオン性界面活性剤を用い

た以外は実施例 1 と同様にしてラジアルリングを作製後、密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表 1 に示す。

(従来例 1)

重量百分率で主要成分組成が N d 23.6%、P r 6.3%、D y 1.9%、B 1.05%、G a 0.08%、C o 2.0%、残部 F e からなる原料合金粗粉 (320メッシュアンダー) を、酸素濃度を 500ppm (体積比) にした窒素ガス雰囲気中でジェットミル粉碎し、平均粒径  $4.0\mu\text{m}$  の微粉を得た。この微粉 (乾粉) のみを用いて図 4 に示す成形機のキャビティ 9 (ダイス 1 および 2 の内径: 60mm、コア 3 の外径: 45mm、ダイス強磁性部 1 の長さ: 34mm、充填深さ: 34mm) に充填後、成形圧:  $0.8\text{ton}/\text{cm}^2$ 、ラジアル方向の配向磁場強度: 約 3kOe で乾式の圧縮成形を行い、ラジアル異方性を付与した成形体を得た。続いて約  $3 \times 10^{-5}$  Torr、1080℃ で 2 時間焼結後室温まで冷却した。以降は実施例 1 と同様にして熱処理、機械加工およびエポキシ樹脂コーティングを施し、比較例のラジアルリングを得た。このラジアルリングの密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表 1 に示す。

(従来例 2)

乾式の圧縮成形時のラジアル配向磁場強度を約 4kOe とした以外は従来例 1 と同様にしてラジアルリングを作製し、評価した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 1 5 】

【表 1】

	界面活性剤	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	Br// (kG)	Br⊥ (kG)	iHc (kOe)	(BH) <sub>max</sub> (MG0e)	(Hk/iHc) (%)	配向度 (%)
実施例 1	オレイン酸 モノグリセリド	7.60	13.0	1.43	17.9	40.2	96.3	90.1
実施例 2	ポリオキシエチレン アルキルアミン	7.60	13.1	1.33	18.1	40.0	96.2	90.8
実施例 3	ソルビタン トリオレート	7.61	12.8	1.63	17.6	38.9	95.5	88.7
実施例 4	特殊高分子 界面活性剤	7.61	12.6	1.78	17.3	37.1	90.4	87.6
実施例 5	特殊ポリカルボン酸型 高分子界面活性剤	7.60	12.6	1.83	16.8	36.4	88.5	87.3
比較例 1	なし	7.61	12.3	2.14	18.0	35.3	87.1	85.2
従来例 1	なし	7.56	12.1	2.41	16.2	33.9	70.2	83.4
従来例 2	なし	7.55	12.3	2.36	16.1	34.6	73.2	83.9

## 【0016】

表1の実施例1～5、比較例1のものはいずれも重量%で酸素含有量が0.2%未満、炭素含有量が0.1%未満、窒素含有量が0.02～0.15%になっていた。これに対し、従来例1、2のものは酸素含有量が0.55%および0.58%、炭素含有量が0.06%および0.07%、窒素含有量が0.006%および0.008%であった。

表1より、本発明によれば、密度が7.57g/cm<sup>3</sup>以上であり、かつラジアル方向におけるBr//が12.5kG以上、iHcが15.0kOe以上、(BH)<sub>max</sub>が35.5MG0e以上および(Hk/iHc)が87.5%以上であり、かつ長さ方向におけるBr⊥が2.0kG以下であるとともに、ラジアル方向の配向度が85.5%以上である従来にない高いラジアル異方性を有するR-T-B系希土類焼結磁石を提供できることがわかる。

## 【0017】

## (実施例6)

実施例1と同様にしてラジアル異方性を付与した同一寸法の4つのリング状成形体を作製した。次に、これら4つの成形体の平面部がキャビティ9において相互に密着するように配置した後、無磁場中で成形圧：1.0ton/cm<sup>2</sup>にて圧縮成形し、前記4つの成形体を積層して一体化した集集成形体を得た。この集集成形体を用いて、以降は実施例1と同様にして外径47mm、内径38mm、高さ43mmの本発明

のラジアルリングを得た。このラジアルリング20は図6の模式図に示すように、個々の成形体の継ぎ目に相当する部分が焼結されてなる接合部21を有している。接合部21では対応する表面磁束密度の落ち込み22（通常数十G程度）が観察される。ラジアルリング20の非接合部24から実施例1と同様にして直方体を切り出し、密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表2に示す。

（比較例2）

比較例1と同様にしてラジアル異方性を付与した同一寸法の4つのリング状成形体を作製した。次に、これら4つの成形体の平面部がキャビティ9において相互に密着するように配置した後、無磁場中で成形圧： $1.0\text{ton/cm}^2$ にて圧縮成形し、前記4つの成形体を積層して一体化した集集成形体を得た。この集集成形体を用いて、以降は比較例1と同様にして脱油、焼結、熱処理、機械加工およびエポキシ樹脂コーティングを行い、外径47mm、内径38mm、高さ43mmの比較例のラジアルリングを得た。このラジアルリングは個々の成形体の継ぎ目に相当する部分が焼結されてなる接合部を有している。このラジアルリングの非接合部から実施例1と同様にして直方体を切り出し、密度および磁気特性を測定し、配向度を求めた。結果を表2に示す。

【0018】

【表2】

	界面活性剤	密度 ( $\text{g/cm}^3$ )	Br// (kG)	Br⊥ (kG)	iHc (kOe)	(BH) <sub>max</sub> (MG0e)	(Hk/iHc) (%)	配向度 (%)
実施例 6	オレイン酸 モノグリセリド	7.61	12.9	1.42	18.0	40.1	96.0	90.1
比較例 2	なし	7.60	12.2	2.31	18.1	35.0	86.6	84.1

【0019】

実施例6、比較例2のものはいずれも重量%で酸素含有量が0.2%未満、炭素含有量が0.1%未満、窒素含有量が0.02～0.15%の範囲のものであった。

表2より、本発明によれば、密度が $7.57\text{g/cm}^3$ 以上であり、かつラジアル方向におけるBr//が12.5kG以上、iHcが15.0kOe以上、(BH)<sub>max</sub>が35.5MG0e以上および(Hk/iHc)が87.5%以上であり、かつ長さ方向におけるBr⊥が2.0kG以下であると

もに、ラジアル方向の配向度が85.5%以上である、焼結された接合部を有する、ラジアル異方性が付与された高性能のR-T-B系希土類焼結磁石を提供できることがわかる。

#### 【0020】

図1は実施例1、2および比較例1において、それぞれ圧縮成形圧力を変化したときの、ラジアル異方性を有する成形体の密度と成形圧力との相関の一例を示している。

図1より、実施例1、2の成形体密度が比較例1の成形体密度に比べて顕著に向上しており、界面活性剤の添加によりスラリー状の成形原料の充填性が改善されたことがわかる。成形体密度の向上は、(1)従来よりもニアネットの希土類焼結磁石製品が得られる、(2)成形圧力を低減できるので成形体の配向度向上および金型の長寿命化が実現される、(3)成形体強度が向上するので従来成形が困難であった薄肉品あるいは長尺品の成形が可能になる、ことであり好ましい。

#### 【0021】

図2は実施例1、2において、それぞれ界面活性剤の添加量を変化したときの、ラジアル異方性を有する成形体の密度と界面活性剤の添加量との相関の一例を示している。

図2より、界面活性剤の添加量が0.3重量%超では成形体密度がほぼピーク値を維持して飽和する傾向が認められるが、同時に希土類炭化物が増大するので実用に耐える磁気特性を得ることが困難になる。一方、界面活性剤の添加量が0.01重量%未満では成形体密度を向上することが困難である。

#### 【0022】

図3は実施例1、比較例1および従来例1において、それぞれラジアル配向磁場強度(Hap)を変えたときの、Hapと最終的に得られたラジアルリングのBr//との相関の一例を示している。

図3より、本発明によれば、成形工程において、5kOe以下、より好ましくは4kOe以下、特に好ましくは3kOe以下という実用性に富んだラジアル配向磁界を印加した場合でも最終的に得られるラジアルリングのBr//（配向度）を顕著に向上できることがわかる。



## 【 0 0 2 3 】

上記実施例ではラジアルリングの場合を記載したが、本発明によればラジアル異方性を有するアークセグメント形状の希土類焼結磁石においても上記と同様の効果を得ることができる。

## 【 0 0 2 4 】

また、上記実施例では粉碎した微粉を大気に触れることなく上述の油と界面活性剤とからなる液中に回収してスラリー状の成形原料とした場合を記載した。

本発明はこれに限定されず、酸素含有量が0.6重量%以下の微粉を上述の油と界面活性剤とからなる液中に回収してスラリー状の成形原料とした場合でも最終的に得られるラジアル異方性を有する希土類焼結磁石のBr//（配向度）を向上することができる。

## 【 0 0 2 5 】

## 【発明の効果】

以上記述の通り、本発明によれば、従来に比べてラジアル方向の磁気特性を顕著に向上したラジアル異方性を有する希土類焼結磁石およびその製造方法を提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図 1】

本発明に係る成形圧力と成形体密度との相関の一例を示す図である。

## 【図 2】

スラリーに添加する界面活性剤の添加量と成形体密度との相関の一例を示す図である。

## 【図 3】

ラジアル配向磁場強度(Hap)とラジアルリングのBr//との相関の一例を示す図である

## 【図 4】

本発明に用いる成形機の一例を示す要部断面図である。

## 【図 5】

本発明の希土類焼結磁石の評価用試料の切り出し要領を説明する矢視図(a)、

要部断面図(b)である。

【図 6】

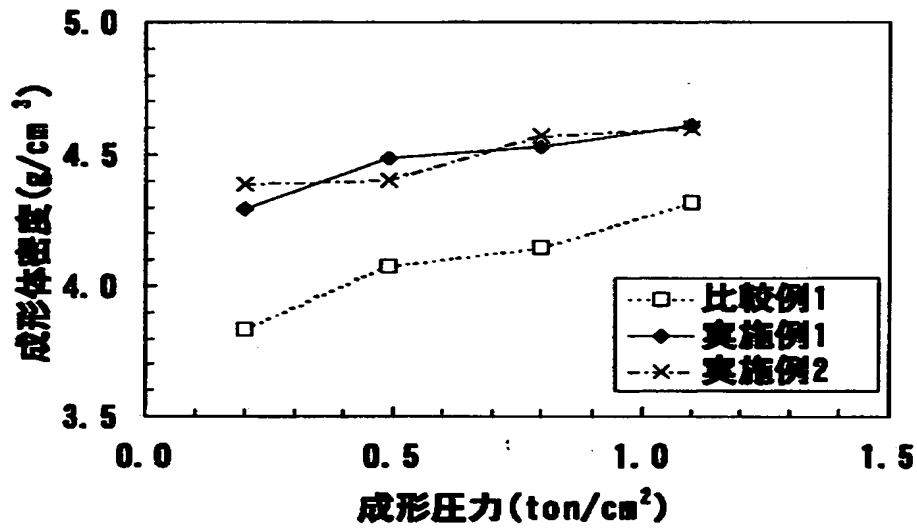
本発明の希土類焼結磁石の側面図およびそれに対応する表面磁束密度分布の一例を模式的に示す図(a)、ラジアル異方性の付与状況を模式的に示す図(b)である。

【符号の説明】

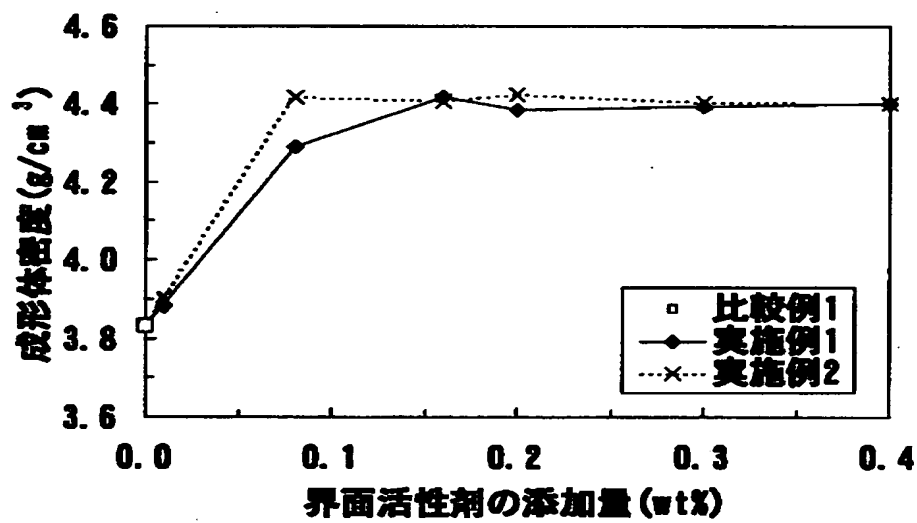
- 1 ダイス強磁性部、2 ダイス非磁性部、3 コア、4 上パンチ、
- 5 下パンチ、6 上部コイル、7 下部コイル、8 プレスフレーム、
- 9 キャビティ、10,20 ラジアルリング、21 焼結された接合部、
- 22 焼結された接合部に対応した表面磁束密度の落ち込み、
- 23 ラジアル異方性の付与、24 非接合部。

【書類名】 図面

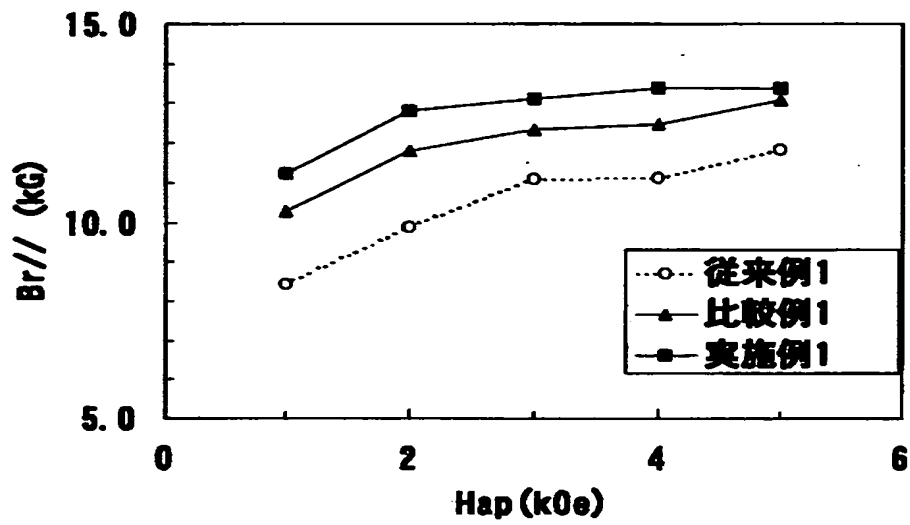
【図 1】



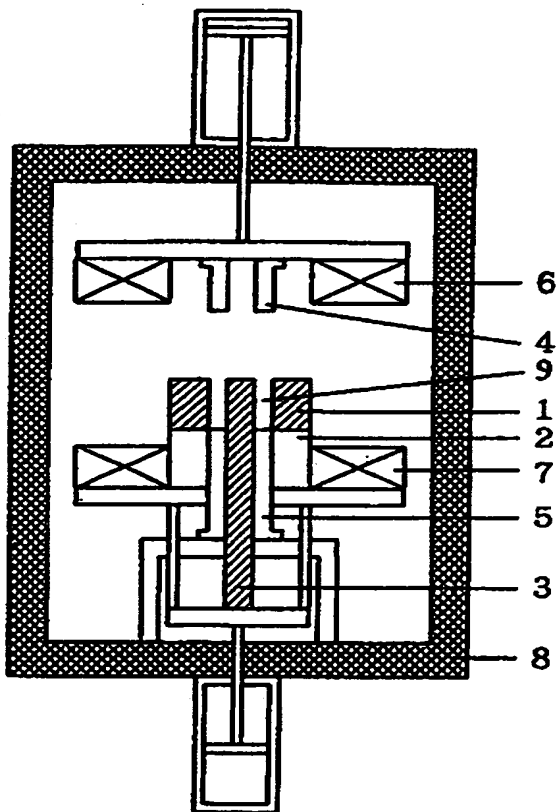
【図 2】



【図 3】

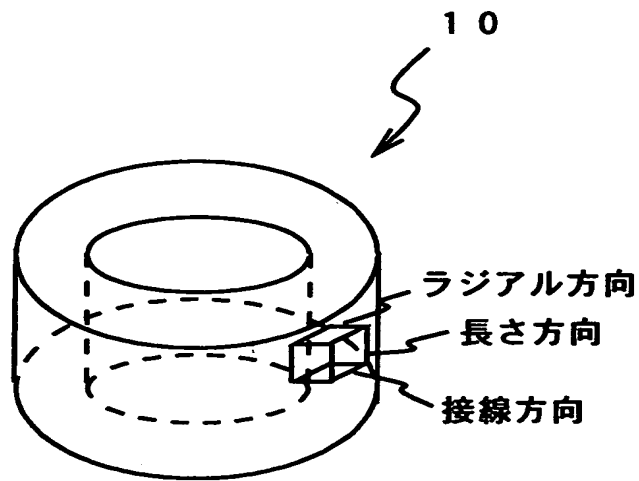


【図 4】

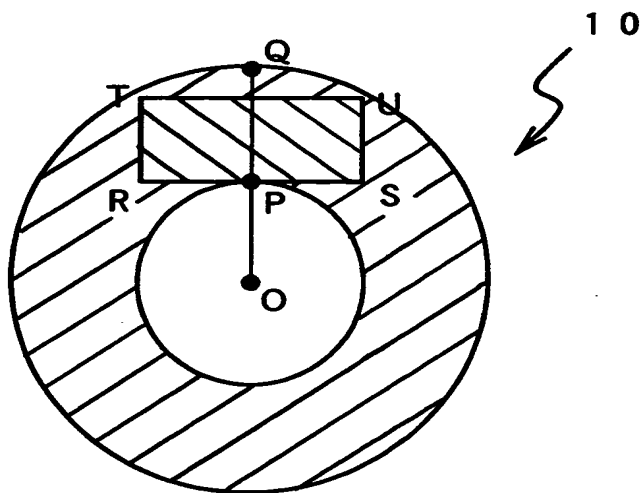


【図 5】

(a)

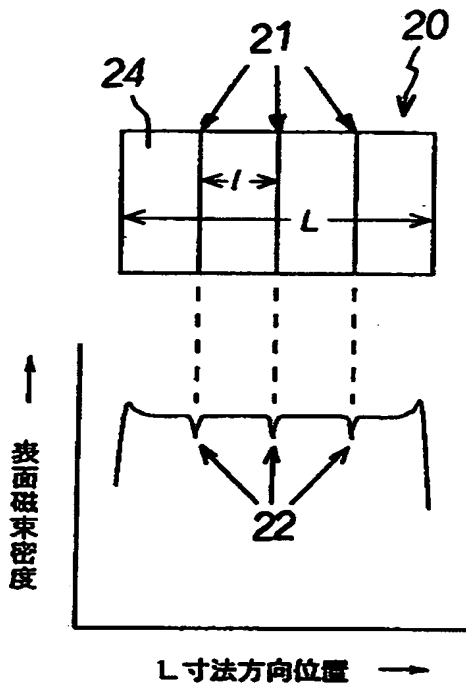


(b)

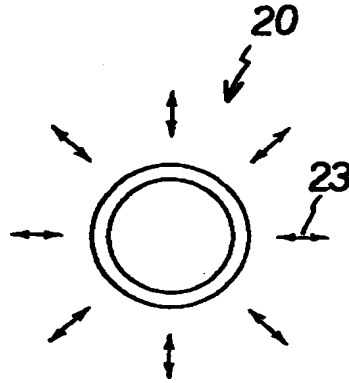


【図 6】

(a)



(b)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来に比べてラジアル方向の磁気特性を顕著に向上した希土類焼結磁石およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 ララジアル異方性を有し、ラジアル方向の残留磁束密度 ( $Br_{//}$ ) とラジアル方向に対して垂直な長さ方向の残留磁束密度 ( $Br_{\perp}$ ) とにより  $[(Br_{//})/(Br_{//} + Br_{\perp}) \times 100(\%)]$  で定義する室温における配向度が85.5%以上であり、かつ室温におけるラジアル方向の角形比( $H_k/iH_c$ )が87.5%以上であることを特徴とする希土類焼結磁石。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	平成11年 特許願 第329590号
受付番号	59901133486
書類名	特許願
担当官	第二担当上席 0091
作成日	平成11年11月24日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成11年11月19日
-------	-------------



出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 5 0 8 3]

1. 変更年月日	1 9 9 9 年 8 月 1 6 日
[変更理由]	住所変更
住 所	東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号
氏 名	日立金属株式会社